

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of
the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平4-290851

(43)公開日 平成4年(1992)10月15日

(51)Int.Cl. ³	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 C 211/54		6917-4H		
C 0 9 K 9/02	A	8930-4H		
G 0 3 G 5/06	3 1 3	8305-2H		
// H 0 5 B 33/14		8815-3K		

審査請求 未請求 請求項の数1(全 15 頁)

(21)出願番号	特願平3-52377	(71)出願人	000006079 ミノルタカメラ株式会社 大阪府大阪市中央区安土町二丁目3番13号 大阪国際ビル
(22)出願日	平成3年(1991)3月18日	(72)発明者	植田 秀昭 大阪府大阪市中央区安土町二丁目3番13号 大阪国際ビル ミノルタカメラ株式会社内
		(74)代理人	弁理士 青山 葆 (外1名)

(54)【発明の名称】 新規スチリル化合物およびそれを用いた感光体

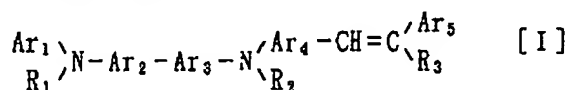
(57)【要約】

*を目的とする。

【目的】 本発明は新規なスチリル化合物を提供することを目的とする。本発明は、さらに、該スチリル化合物を感光体、エレクトロルミネセンス素子へ応用すること*

【構成】 本発明は下記一般式【I】:

【化1】



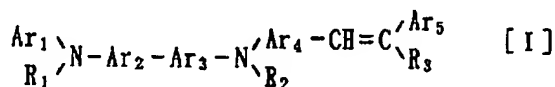
〔式中、Ar₁は置換基を有してもよいアリール基を表す；Ar₂、Ar₃およびAr₄はそれぞれ、置換基を有してもよいアリーレン基を表す；Ar₅は置換基を有してもよい、アリール基または複素環式基を表す；R₁およびR₂はそれぞれ、置換基を有してもよい、アルキル

基、アラルキル基、アリール基あるいは複素環式基を表す；R₃は水素原子、置換基を有してもよい、アルキル基、アラルキル基、アリール基あるいは複素環式基を表す。〕で表されるスチリル化合物に関する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記一般式 [I] :

* 【化1】



【式中、Ar₁は置換基を有してもよいアリール基を表す；Ar₂、Ar₃およびAr₄はそれぞれ、置換基を有してもよいアリーレン基を表す；Ar₅は置換基を有してもよい、アリール基または複素環式基を表す；R₁およびR₂はそれぞれ、置換基を有してもよい、アルキル基、アラルキル基、アリール基あるいは複素環式基を表す；R₃は水素原子、置換基を有してもよい、アルキル基、アラルキル基、アリール基あるいは複素環式基を表す。】で表されるスチリル化合物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

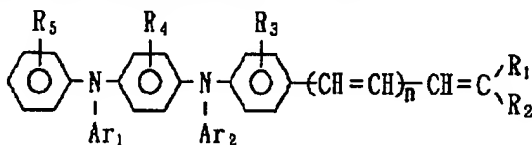
【産業上の利用分野】 本発明は、スチリル構造を有する※

※新規な化合物に関する。該スチリル化合物は、感光材料として利用することができ、さらに具体的には感光体あるいはエレクトロルミネセンス素子の電荷輸送物質として利用することができる。

【0002】

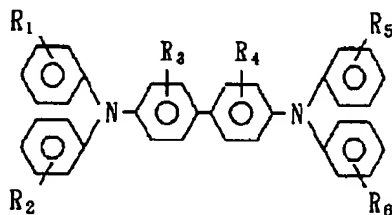
【従来の技術】 感光材料や電荷輸送材料として使用可能な有機化合物は、従来より、例えばアントラセン誘導体、アントラキノン誘導体、イミダゾール誘導体、カルバゾール誘導体、スチリル誘導体、スチリル誘導体等種々知られており、また特開平2-154270号公報には下記一般式：

【化2】



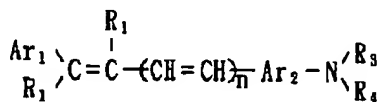
【式中、R₁~R₅、Ar₁、Ar₂およびnは上記公報中に記載のもの】、特開平1-142646号公報には下記一般式：

【化3】



【式中、R₁~R₆は上記公報中に記載のものを表す】で表される化合物、特開昭60-98437号公報には下記一般式：

【化4】



【式中、R₁~R₄、Ar₁、Ar₂およびnは上記公報中★

★に記載のもの】が開示されている。しかし、上述した材料を、例えば感光体に適用する場合、感光性あるいは電荷輸送性等に優れていることを基本的に要求されるが、さらに他の部材との適合性、耐久性、耐候性等も要求され、このような特性を満足する材料は殆ど無いのが実情である。

【0003】

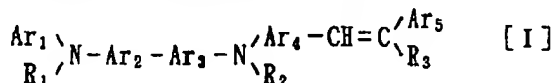
30 【発明が解決しようとする課題】 本発明は、上記事情に鑑みなされたものであり、上記したいずれの構造とも異なり、かつ新規なスチリル化合物を提供することを目的とする。本発明は、さらに該新規なスチリル化合物を使用した感光体を提供することを目的とする。本発明は、さらに該新規なスチリル化合物を電荷輸送層に使用したエレクトロルミネセンス素子を提供することを目的とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明は下記一般式 [I] :

【0005】

【化5】



で表されるスチリル化合物を提供する。

【0006】 一般式 [I] 中、Ar₁およびAr₅はそれぞれ、アリール基、例えばフェニル、ナフチル等を表す。Ar₅はさらにチオフェン、フランあるいはジオキサインダン等の複素環の残基であってもよい。それらの

基はアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子等の置換基を有していてもよい。Ar₂、Ar₃およびAr₄はそれぞれ、アリーレン基、例えばフェニレン、ナフチレン等のアリーレン基を表し、それらの基はアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子等の置換基を有してもよい。

3

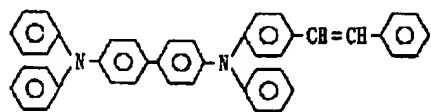
R₁、R₂およびR₃はそれぞれ、アルキル基、例えばメチル基、エチル基、プロピル基あるいはブチル基等、アラルキル基、例えば、ベンジル基あるいはフェネチル基等、アリール基、例えばフェニルあるいはナフチル等、または複素環、例えばピロールあるいはチオフェン等の残基を表す。それらの基はアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子等の置換基を有してもよい。R₃はさらに水素原子であってもよい。

【0007】一般式【I】で表されるスチリル構造を有する化合物の具体例としては、下記構造式のもの挙げることができる。

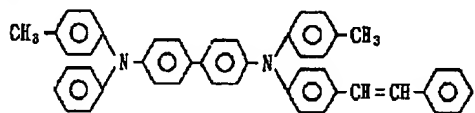
【0008】

【化6】

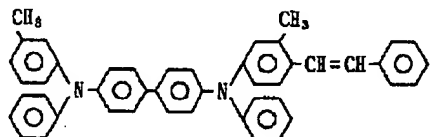
[1]



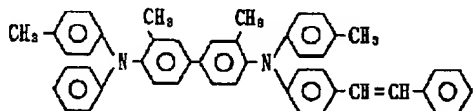
[2]



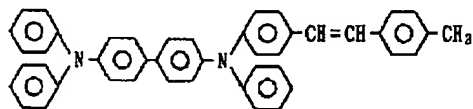
[3]



[4]



[5]



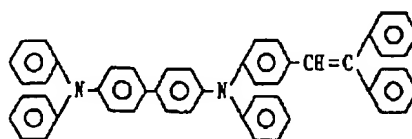
【0009】

【化7】

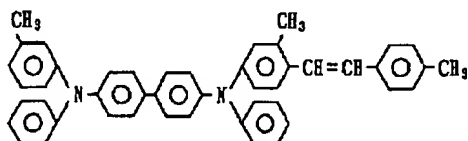
40

4

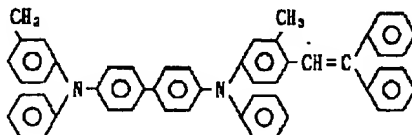
[6]



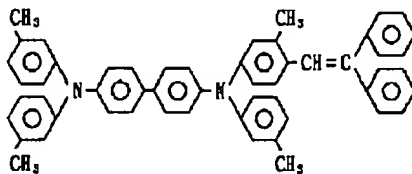
[7]



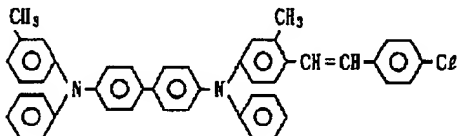
[8]



[9]



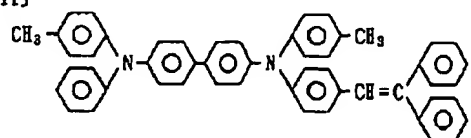
[10]



【0010】

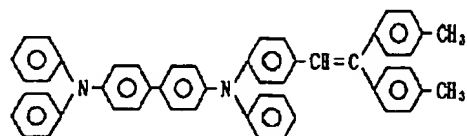
30 【化8】

[11]



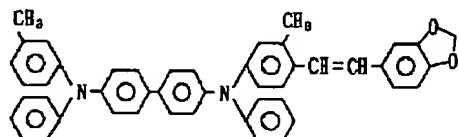
* [0011]
[化9]

[12]

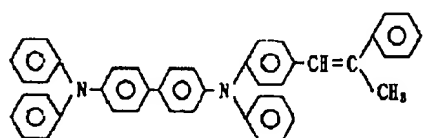


10

[13]

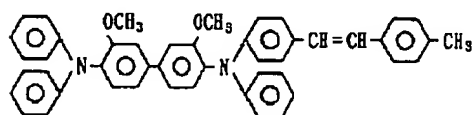


[14]



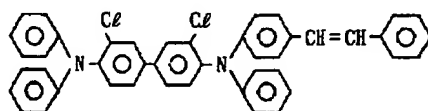
20

[15]

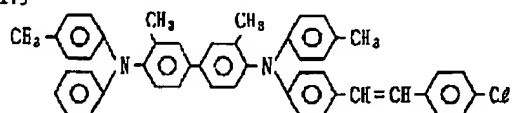


*

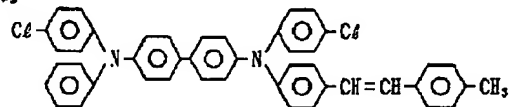
[16]



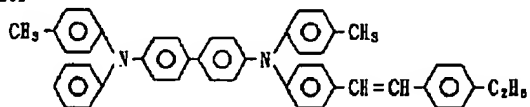
[17]



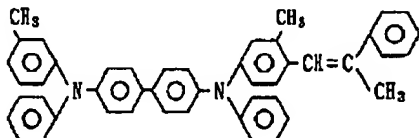
[18]



[19]



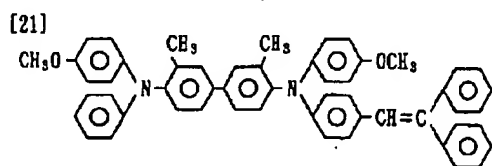
[20]



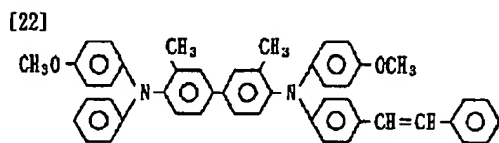
[0012]

50 [化10]

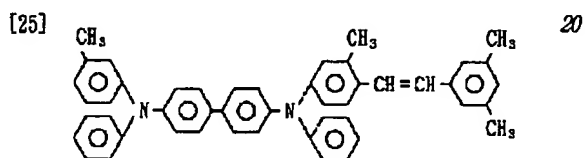
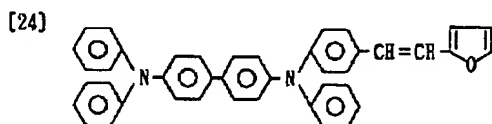
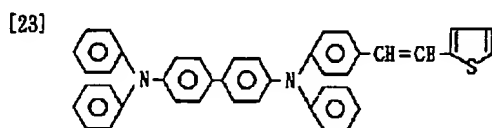
7



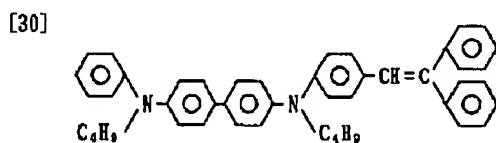
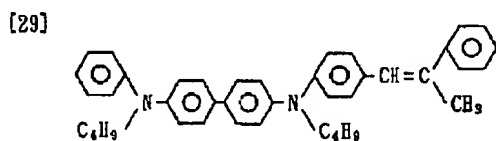
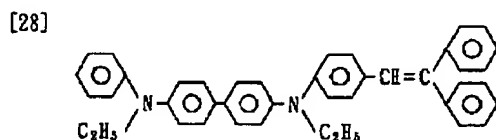
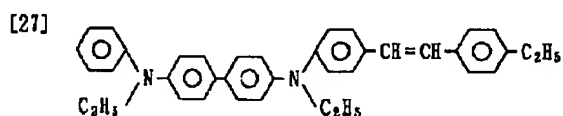
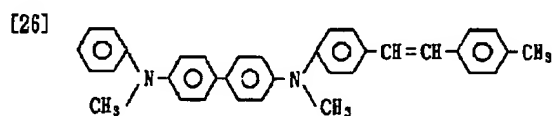
[0013]
[化11]



10

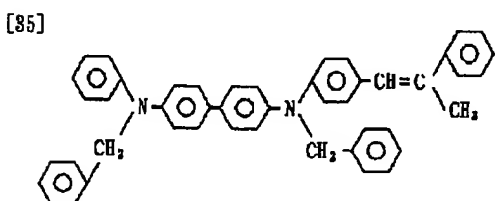
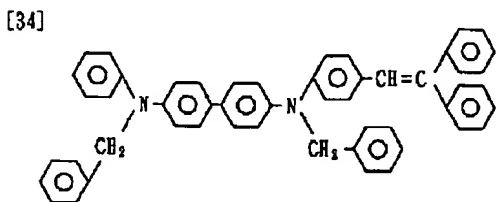
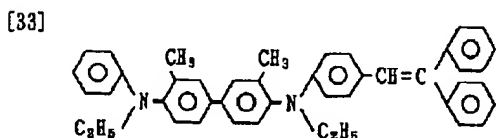
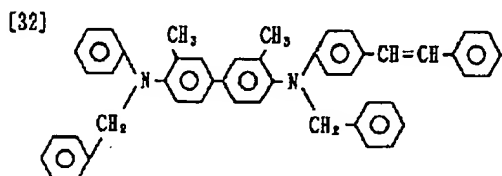
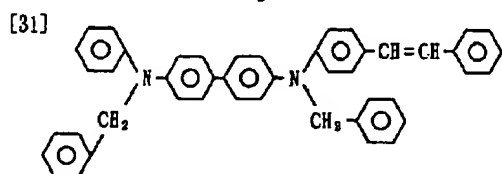


20



[0014]
[化12]

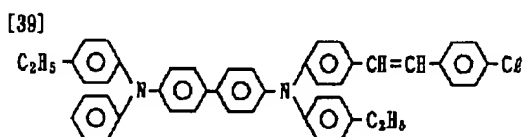
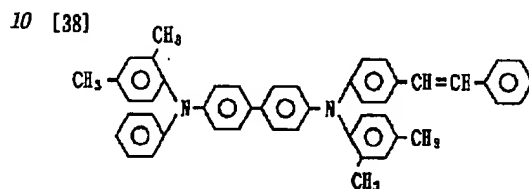
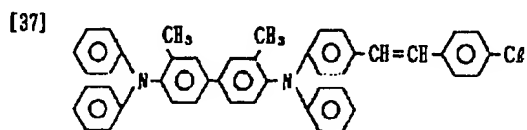
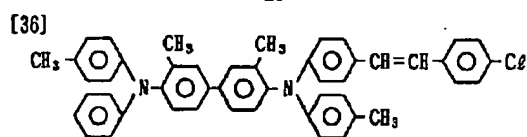
9



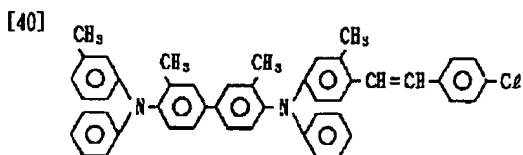
【0015】

【化13】

10

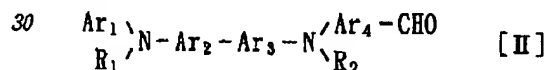


20



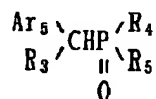
【0016】一般式【I】で表されるスチリル化合物は、通常の方法により合成することができる。例えば、下記一般式【II】：

【化14】



【式中、Ar₁、Ar₂、Ar₃、Ar₄、R₁およびR₂は前記一般式【I】と同義】で表されるアルデヒド化合物と、下記一般式【III】：

【化15】



40

【式中、Ar₅およびR₃は前記一般式【I】と同義；R₄、R₅はホスホニウム塩を形成するアルキル基、シクロアルキル基、アラルキル基あるいはアリール基を表す。】で表されるリン化合物を縮合反応させることにより合成することができる。上記一般式【III】で表されるリン化合物をのR₄およびR₅は、特にシクロヘキシル基、ベンジル基、フェニル基、アルキル基が好ましい。

【0017】上記方法における反応溶媒としては、例えば 50 炭化水素、アルコール類、エーテル類が良好で、メタ

ノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、2-メトキシエタノール、1, 2-ジメトキシエタン、ビス(2-メトキシエチル)エーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン、トルエン、キシレン、ジメチルスルホキシド、N, N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン等が挙げられる。中でも、極性溶媒、例えばN, N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドが好適である。縮合剤としては、苛性ソーダ、苛性カリ、ナトリウムアミド、水素ナトリウムおよびナトリウムメチラート、ナトリウムエチラート、カリウムメチラート、カリウムエチラート、カリウム-*t*-ブトキシド、*n*-ブチリチウム等のアルコラートが用いられる。

【0018】反応温度は約0°C~約100°Cまで広範囲に選択することができる。好ましくは10~80°Cである。また本発明において使用する化合物【I I】はリン化合物の代わりに、対応する第4級ホスホニウム塩、例えばトリフェニルホスホニウム塩を使用し、ウィッティヒ(Wittig)の方法により、ホスホリレンの段階を経て、アルデヒド化合物【I I】と縮合することによりスチリル化合物【I】を合成してもよい。

【0019】これらのスチリル化合物は、単独で用いても混合してもよい。また、他の電荷輸送物質、例えばヒドラゾン化合物と混合して使用することも可能である。一般式【I】で表されるスチリル化合物は、光感度、電荷の輸送性に優れており、光導電性材料として極めて有効に使用することができ、特に電荷輸送性に優れている。

【0020】本発明の一般式【I】で表されるスチリル化合物は、感光体の感光材料、特に電荷輸送物質として利用することができる。また、その電荷輸送性を利用してエレクトロルミネセンス素子の電荷輸送層に利用することができる。

【0021】まず、一般式【I】で表されるスチリル化合物を感光体の電荷輸送材料として利用する場合について説明する。感光体としては、各種の形態の感光体が知られており、本発明のスチリル化合物は、そのいずれの形態の感光体にも適用できる。たとえば、支持体上に電荷発生材料と、電荷輸送材料を樹脂バインダーに分散させて成る感光層を設けた単層感光体や、支持体上に電荷発生材料を主成分とする電荷発生層を設け、その上に電荷輸送層を設けた所謂積層型感光体等がある。本発明のスチリル化合物1種または2種以上を電荷輸送材料に用いる。該スチリル化合物は電荷輸送物質として作用し、光を吸収することにより発生した電荷担体を、極めて効率よく輸送することができる。

【0022】また、本発明のスチリル化合物は、耐オゾン性、光安定性に優れているので、耐久性に優れた感光体を得ることができる。さらに、本発明のスチリル化合物は、バインダー樹脂との相溶性がよく、結晶が析出し

にくく、感度、繰返し特性の向上に寄与している。

【0023】電荷発生材料としては、ビスアゾ系染料、トリアリールメタン系染料、チアジン系染料、オキサジン系染料、キサンテン系染料、シアニン系色素、スチリル色素、ピリリウム系染料、アゾ系染料、キナクリドン系染料、インジゴ系染料、ペリレン系染料、多環キノ系染料、ビスベンズイミダゾール系染料、インダスロン系染料、スクアリウム塩系染料、アズレン系色素、フタロシアニン系染料等の有機物質や、セレン、セレン・テルル、セレン・砒素などのセレン合金、硫化カドミウム、セレン化カドミウム、酸化亜鉛、アモルファスシリコン等の無機物質が挙げられる。これ以外でも、光を吸収し極めて高い確率で電荷担体を発生する材料であれば、いずれの材料であっても使用することができる。

【0024】適当な結着剤樹脂の例は、これに限定されるものではないが、飽和ポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂、アクリル樹脂、エチレン-酢酸ビニル樹脂、イオン架橋オレフィン共重合体(アイオノマー)、スチレン-ブタジエンブロック共重合体、ポリカーボネート、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合体、セルロースエステル、ポリイミド、スチロール樹脂等の熱可塑性樹脂;エポキシ樹脂、ウレタン樹脂、シリコン樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、キシレン樹脂、アルキッド樹脂、熱硬化アクリル樹脂等の熱硬化性樹脂;光硬化性樹脂;ポリビニルカルバゾール、ポリビニルピレン、ポリビニルアントラセン、ポリビニルピロール等の光導電性樹脂である。これらは単独で、または組合せて使用することができる。これら電気絶縁性樹脂は単独で測定して $1 \times 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上の体積抵抗を有することが望ましい。

【0025】単層型感光体を作製するためには、電荷発生材料の微粒子を樹脂溶液もしくは電荷輸送材料と樹脂を溶解した溶液中に分散せしめ、これを導電性支持体上に塗布乾燥すればよい。この時の感光層の厚さは3~30 μm 、好ましくは5~20 μm がよい。使用する電荷発生材料の量が少な過ぎると感度が悪く、多過ぎると帯電性が悪くなったり、感光層の機械的強度が弱くなったりし、感光層中に占める割合は樹脂1重量部に対して0.01~2重量部、好ましくは、0.2~1.2重量部の範囲がよい。

【0026】積層型感光体を作製するには、導電性支持体上に電荷発生材料を真空蒸着するか、あるいは、アミン等の溶媒に溶解せしめて塗布するか、顔料を適当な溶剤もしくは必要があればバインダー樹脂中に溶解させた溶液中に分散させて作製した塗布液を塗布乾燥した後、その上に電荷輸送材料およびバインダーを含む溶液を塗布乾燥して得られる。このときの電荷発生層の厚みは4 μm 以下、好ましくは2 μm 以下がよく、電荷輸送層の厚みは3~30 μm 、好ましくは5~50 μm がよい。電荷輸送層中の電荷輸送材料の割合はバインダー樹脂1重量部に対して0.2~2重量部、好ましくは、0.3~

1. 3重量部である。

【0027】本発明の感光体はバインダー樹脂とともに、ハロゲン化パラフィン、ポリ塩化ビフェニル、ジメチルナフタレン、ジブチルフタレート、 α -ターフェニルなどの可塑剤やクロラニル、テトラシアノエチレン、2,4,7-トリニトロフルオレノン、5,6-ジシアノベンゾキノン、テトラシアノキノジメタン、テトラクロル無水フタル酸、3,5-ジニトロ安息香酸等の電子吸引性増感剤、メチルバイオレット、ローダミンB、シアニン染料、ピリリウム塩、チアピリリウム塩等の増感剤を使用してもよい。本発明において使用される電気絶縁性のバインダー樹脂としては、電気絶縁性であるそれ自体公知の熱可塑性樹脂あるいは熱硬化性樹脂や光硬化性樹脂や光導電性樹脂等の結着剤を使用できる。本発明の感光体に用いられる導電性支持体としては、銅、アルミニウム、銀、鉄、ニッケル等の箔ないしは板をシート状又はドラム状にしたものが使用され、あるいはこれらの金属を、プラスチックフィルム等に真空蒸着、無電解メッキしたもの、あるいは導電性ポリマー、酸化インジウム、酸化錫等の導電性化合物の層を同じく紙あるいはプラスチックフィルムなどの支持体上に塗布もしくは蒸着によって設けられたものが用いられる。

【0028】本発明のスチリル化合物を用いた感光体の構成例を図1から図5に模式的に示す。図1は、基体(1)上に光電荷発生材料(3)と電荷輸送材料(2)を結着剤に配合した感光層(4)が形成された感光体であり、電荷輸送材料として本発明のスチリル化合物が用いられている。図2は、感光層として電荷発生層(6)と、電荷輸送層(5)を有する機能分離型感光体であり、電荷発生層(6)の表面に電荷輸送層(5)が形成されている。電荷輸送層(5)中に本発明のスチリル化合物が配合されている。図3は、図2と同様に電荷発生層(6)と、電荷輸送層(5)を有する機能分離型感光体であるが、図2とは逆に電荷輸送層(5)の表面に電荷発生層(6)が形成されている。図4は、図1の感光体の表面にさらに表面保護層(7)を設けたものであり、感光層(4)は電荷発生層(6)と、電荷輸送層(5)を有する機能分離型感光体であってもよい。図5は、基体(1)と感光層(4)の間に中間層(8)を設けたものであり、中間層(8)は接着性の改良、塗工性の向上、基体の保護、基体からの感光層への電荷注入性改善のために設けることができる。

【0029】中間層に用いられる材料としては、ポリイミド、ポリアミド、ニトロセルロース、ポリビニルブチラール、ポリビニルアルコール、酸化アルミニウムなどが適当で、また膜厚は1 μ m以下が望ましい。

【0030】本発明の一般式【I】で表されるスチリル化合物はその電荷輸送性を利用してエレクトロルミネセンス素子の電荷輸送層にも適用可能である。以下、本発明のスチリル化合物をエレクトロルミネセンス素子の電荷輸送層へ適用する場合について説明する。

【0031】有機エレクトロルミネセンス素子は電極間に少なくとも有機発光層とスチリル化合物を含んだ電荷輸送層で構成されている。図6にエレクトロルミネセンス素子を模式的に示した。図中、(11)は陽極であり、その上に、電荷輸送層(12)と有機発光層(13)および陰極(14)が順次積層された構成をとっており、該電荷輸送層に上記一般式【I】で表されるスチリル化合物を含有する。陽極(1)と陰極(1)に電圧を印加することにより有機発光層(3)が発光する。

【0032】有機エレクトロルミネセンス素子の陽極(11)として使用される導電性物質としては4eVよりも大きい仕事関数をもつものがよく、炭素、アルミニウム、バナジウム、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、タングステン、銀、スズ、金などおよびそれらの合金、酸化スズ、酸化インジウムが用いられる。陰極(14)を形成する金属としては4eVよりも小さい仕事関数をもつものがよく、マグネシウム、カルシウム、チタニウム、イットリウム、リチウム、ガドリニウム、イッテルビウム、ルテニウム、マンガン、およびそれらの合金が用いられる。

【0033】有機エレクトロルミネセンス素子においては、発光が見られるように、少なくとも陽極(11)あるいは陰極(14)は透明電極とする。この際、陰極に透明電極を使用すると、透明性が損なわれやすいので、陽極を透明電極とすることが好ましい。透明電極を形成する場合、透明基板上に、上記したような導電性物質を用い、蒸着、スパッタリング等の手段で所望の透光性が確保されるように形成すればよい。透明基板としては、適度の強度を有し、エレクトロルミネセンス素子作製時、蒸着等による熱に悪影響を受けず、透明なものであれば特に限定されないが、係るものを例示すると、ガラス基板、透明な樹脂、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエーテルサルフォン、ポリエーテルエーテルケトン等を使用することも可能である。ガラス基板上に透明電極が形成されたものとしてはITO、NESA等の市販品が知られており、それを使用してもよい。

【0034】電荷輸送層(12)は、前記した一般式【I】で表されるスチリル化合物を蒸着して形成してもよいし、該スチリル化合物の適当な溶液または樹脂溶液をスピンコートして形成してもよい。蒸着法で形成する場合、その厚さは、通常0.01~0.3 μ mであり、スピンコート法で形成する場合は、スチリル化合物が結着樹脂に対して20~500重量%程度の含有量となるように、厚さ0.05~1.0 μ m程度に形成すればよい。

【0035】このように形成された電荷輸送層(12)の上には、有機発光層を形成する。有機発光層に用いられる有機発光体としては、公知のものを使用可能で、たとえばエビドリジン、2,5-ビス[5,7-ジ-*tert*-ベンチル-2-ベンゾキサゾリル]チオフェン、2,2'-(1,4-フェニレンジビニレン)ビスベンゾチアゾール、2,

2'-(4,4'-ビフェニレン)ビスベンゾチアゾール、5-メチル-2-[2-[4-(5-メチル-2-ベンゾキサゾリル)フェニル]ピニル]ベンゾオキサゾール、2,5-ビス(5-メチル-2-ベンゾキサゾリル)チオフェン、アントラセン、ナフタレン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ペリレン、ペリノン、1,4-ジフェニルプタジエン、テトラフェニルプタジエン、クマリン、マクリジンスチルベン、2-(4-ビフェニル)-6-フェニルベンゾオキサゾール、アルミニウムトリオキシシ、マグネシウムビスオキシシ、ビス(ベンゾ-8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチル-8キノリノラート)アルミニウムオキサライド、インジウムトリオキシシ、アルミニウムトリシ(5-メチルオキシシ)、リチウムオキシシ、ガリウムトリオキシシ、カルシウムビス(5-クロロオキシシ)、バリ亜鉛-ビス(8-ヒドロキシ-5-キノリノニル)メタン)ジリチウムエピンドリジオン、亜鉛ビスオキシシ、1,2-フタロペリノン、1,2-ナフタロペリノンなどを挙げることができる。また、一般的な蛍光染料、例えば蛍光クマリン染料、蛍光ペリレン染料、蛍光ピラン染料、蛍光チオピラン染料、蛍光ポリメチン染料、蛍光メロシアニン染料、蛍光イミダゾール染料等も使用できる。このうち、特に好ましいものとしてはキレート化オキシノイド化合物が挙げられる。有機発光層は上記した発光物質の単層構成でもよいし、発光の色、発光の強度等の特性を調整するために、多層構成としてもよい。次に、有機発光層の上に、前記した陰極を形成する。

【0036】以上、陽極(11)上に電荷輸送層(12)、発光層(13)および陰極(14)を順次積層して有機ルミネセンス素子を形成する場合について説明したが、陰極(14)上に発光層(13)、電荷輸送層(12)および陽極を順次積層してもよい。

【0037】1組の透明電極は各電極にニクロム線、金*

表1

	C(%)	H(%)	N(%)
計算値	89.32	6.14	4.53
実験値	89.28	6.09	4.41

また、得られた化合物の赤外吸収スペクトルを図7に示した。

【0040】合成例2 化合物[8]の合成

下記式:

【化18】

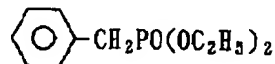
*線、銅線、白金線等の適当なリード線(15)を接続し、有機ルミネセンス素子は両電極に適当な電圧(Vs)を印加することにより発光する。

【0038】本発明の有機エレクトロルミネセンス素子は各種の表示装置、あるいはディスプレイ装置等に適用可能である。以下、具体的実施例を挙げながら本発明を説明する。なお、以下の実施例中、「部」とあるのは、特に断らない限り、「重量部」を意味するものとする。

【0039】合成例1 化合物[3]の合成例

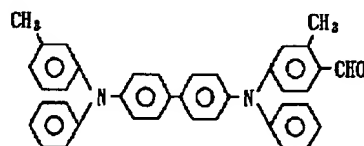
下記式:

【化16】



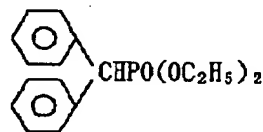
で表されるホスホネート化合物2. 28gと、下記式:

【化17】



で表されるアルデヒド化合物5. 44gをジメチルホルムアミド50mlに溶解した。得られた溶液を5°C以下に冷却しながら、ジメチルホルムアミド70ml中にカリウム-t-c-r-ブトキシド5gを含む懸濁液に滴下した。その後、室温で8時間攪拌した後、一晚放置した。得られた混合物を氷水900ml中に加え、希塩酸で中和した。約30分後、析出した結晶を濾過した。濾過生成物を水で洗浄し、さらにアセトニトリルによる再結晶精製を行い、黄色針状結晶4.7gを得た(収率76%)。融点(mp)は83~84°Cであった。元素分析の結果は以下の通りである(C₁₈H₁₅N₂として)。

【表1】



で表されるホスホネート4.03gと式1で表わされるアルデヒド化合物5.44gをジメチルホルムアミド100mlに溶解した。得られた溶液を5°C以下に冷却しながら、ジメチルホルムアミド70ml中にカリウ

ムーターブトキシド5gを含む懸濁液を滴下した。その後、室温で8時間攪拌した後、得られた混合物を氷水900mlに添加し、希塩酸で中和した。約30分後、析出した結晶を濾過し、得られた主成物を、水で洗浄した後、トルエンに溶解させて、シリカゲルカラムクロマトで分離精製した（展開溶媒トルエン）。

*

表2

	C(%)	H(%)	N(%)
計算値	89.91	6.05	4.03
実験値	89.87	6.01	3.95

また、得られた化合物の赤外吸収スペクトルを図8に示した。

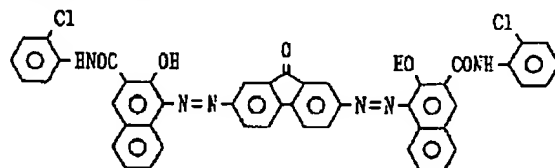
※実施例1

下記一般式[A]で表されるビスアゾ化合物

【0041】感光体の電荷輸送材料への応用

※

【化19】



[A]

0.45部、ポリエステル樹脂(パイロン200;東洋紡績社製)0.45部をシクロヘキサノン50部とともにサンドグラインダーにより分散させた。得られたビスアゾ化合物の分散物を厚さ100 μ mのアルミ化マイラー上にフィルムアプリーケーターを用いて、乾燥膜厚が0.3g/ m^2 となる様に塗布した後乾燥させた。

【0042】このようにして得られた電荷発生層の上にスチリル化合物[2]70部およびポリカーボネート樹脂(バンライトK-1300;帝人化成社製)70部を1,4-ジオキサン400部に溶解した溶液を乾燥膜厚が16 μ mになるように塗布し、乾燥させて電荷輸送層を形成した。このようにして、2層からなる感光層を有する電子写真感光体が得られた。

【0043】こうして得られた感光体を市販の電子写真★

★複写機(ミノルタカメラ社製;EP-470Z)を用い、-6Kvでコロナ帯電させ、初期表面電位 V_0 (V)、初期電位を1/2にするために要した露光量 $E_{1/2}$ (lux \cdot sec)、1秒間暗中に放置したときの初期電位の減衰率DDR₁(%)を測定した。

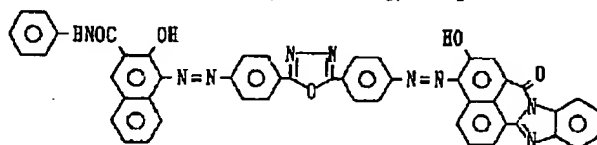
【0044】実施例2~4

30 実施例1と同様の方法で同一の構成のもの、但し実施例1で用いたスチリル化合物[2]の代わりにスチリル化合物[3]、[4]、[6]を各々用いる感光体を作製した。こうして得られた感光体について、実施例1と同様の方法で V_0 、 $E_{1/2}$ 、DDR₁を測定した。

【0045】実施例5

下記一般式[B]で表されるビスアゾ化合物:

【化20】



[B]

0.45部、ポリスチレン樹脂(分子量40000)0.45部をシクロヘキサノン50部とともにサンドグラインダーにより分散させた。

【0046】得られたビスアゾ化合物の分散物を厚さ100 μ mのアルミ化マイラー上にフィルムアプリーケーターを用いて、乾燥膜厚が0.3g/ m^2 となる様に塗布した後乾燥させた。このようにして得られた電荷発生層の上にスチリル化合物[7]70部およびポリアリレート樹

脂(U-100;ユニチカ社製)70部を1,4-ジオキサン400部に溶解した溶液を乾燥膜厚が16 μ mになるように塗布し、乾燥させて電荷輸送層を形成した。このようにして、2層からなる感光層を有する電子写真感光体を作製した。

【0047】実施例6~8

50 実施例5と同様の方法で同一の構成のもの、但し実施例5で用いたスチリル化合物[7]の代わりにスチリル化

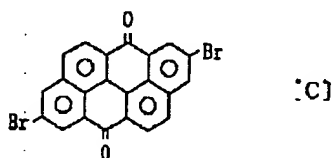
19

物[8]、[9]、[10]を各々用いる感光体を作製した。こうして得られた感光体について、実施例1と同様の方法で V_0 、 $E_{1/2}$ 、 DDR_1 を測定した。

[0048] 実施例9

下記一般式[C]で表される多環キノ系顔料：

[化21]



0.45部、ポリカーボネート樹脂(バンライトK-13000;市人化成社製)0.45部をジクロルエタン50部とともにサンドミルにより分散させた。得られた多環キノ系顔料の分散物を厚さ100 μm のアルミ化マイラー上にフィルムアプリーケーターを用いて、乾燥膜厚が0.4g/ m^2 となる様に塗布した後乾燥させた。このようにして得られた電荷発生層の上にスチリル化合物[11]60部およびポリアリレート樹脂(U-100;ユニチカ社製)50部を1,4-ジオキサン400部に溶解した溶液を乾燥膜厚が18 μm になるように塗布し、乾燥させて電荷輸送層を形成した。このようにして、2層からなる感光層を有する電子写真感光体を作製した。

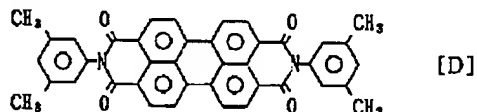
[0049] 実施例10~11

実施例9と同様の方法で同一の構成のもの、但し実施例9で用いたスチリル化合物[11]の代わりにスチリル化合物[15]、[17]を各々用いる感光体を作製した。こうして得られた感光体について、実施例1と同様の方法で V_0 、 $E_{1/2}$ 、 DDR_1 を測定した。

[0050] 実施例12

下記一般式[D]で表されるペリレン系顔料

[化22]



0.45部、ブチラール樹脂(BX-1;積水化学工業社製)0.45部をジクロルエタン50部とともにサンドミルにより分散させた。得られたペリレン系顔料の分散物を厚さ100 μm のアルミ化マイラー上にフィルムアプリーケーターを用いて、乾燥膜厚が0.4g/ m^2 となる様に塗布した後乾燥させた。このようにして得られた電荷発生層の上にスチリル化合物[19]50部およびポリカーボネート樹脂(PC-Z;三菱ガス化学社製)50部を1,4-ジオキサン400部に溶解した溶液を乾燥膜厚が18 μm になるように塗布し、電荷輸送層を形成した。このようにして、2層からなる感光層を有する電子写真感光体を作製した。

[0051] 実施例13~14

20

実施例12と同様の方法で同一の構成のもの、但し実施例12で用いたスチリル化合物[19]の代わりにスチリル化合物[20]、[25]を各々用いる感光体を作製した。こうして得られた感光体について、実施例1と同様の方法で V_0 、 $E_{1/2}$ 、 DDR_1 を測定した。

[0052] 実施例15

チタニルフタロシアニン0.45部、ブチラール樹脂(BX-1;積水化学工業社製)0.45部をジクロルエタン50部とともにサンドミルにより分散させた。得られたフタロシアニン顔料の分散物を厚さ100 μm のアルミ化マイラー上にフィルムアプリーケーターを用いて、乾燥膜厚が0.3g/ m^2 となる様に塗布した後乾燥させた。このようにして得られた電荷発生層の上にスチリル化合物[30]50部およびポリカーボネート樹脂(PC-Z;三菱ガス化学社製)50部を1,4-ジオキサン400部に溶解した溶液を乾燥膜厚が18 μm になるように塗布し、電荷輸送層を形成した。このようにして、2層からなる感光層を有する電子写真感光体を作製した。

[0053] 実施例16~17

実施例15と同様の方法で同一の構成のもの、但し実施例15で用いたスチリル化合物[30]の代わりにスチリル化合物[31]、[32]を各々用いる感光体を作製した。こうして得られた感光体について、実施例1と同様の方法で V_0 、 $E_{1/2}$ 、 DDR_1 を測定した。

[0054] 実施例18

銅フタロシアニン50部とテトラニトロ銅フタロシアニン0.2部を98%濃硫酸500部に充分攪拌しながら溶解させ、これを水5000部にあげ、銅フタロシアニンとテトラニトロ銅フタロシアニンの光導電性材料組成物を析出させた後、濾過、水洗し、減圧下120℃で乾燥した。こうして得られた光導電性組成物10部を熱硬化性アクリル樹脂(アクリディクA405;大日本インク社製)22.5部、メラミン樹脂(スーパーベッカミンJ820;大日本インク社製)7.5部、スチリル化合物[36]15部を、メチルエチルケトンとキシレンを同量に混合した混合溶剤100部とともにボールミルボットに入れて48時間分散して感光性塗液を調製し、この塗液をアルミニウム基体上に塗布、乾燥して厚さ約15 μm の感光層を形成させ感光体を作製した。こうして得られた感光体について、実施例1と同様の方法、但しコロナ帯電を+6Kvで行ない、 V_0 、 $E_{1/2}$ 、 DDR_1 を測定した。

[0055] 実施例19~21

実施例18と同様の方法で同一の構成のもの、但し実施例18で用いたスチリル化合物[36]の代わりにスチリル化合物[37]、[39]、[40]を各々用いる感光体を作製した。こうして得られた感光体について、実施例18と同様の方法で V_0 、 $E_{1/2}$ 、 DDR_1 を測定した。

[0056] 比較例1~4

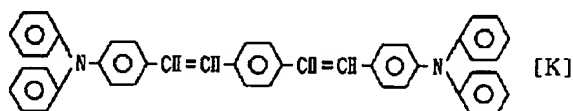
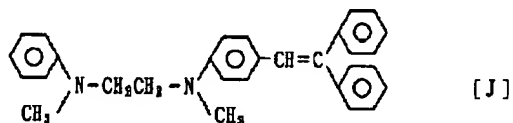
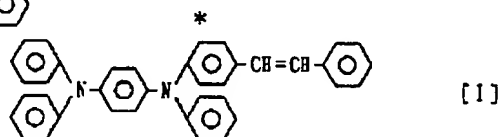
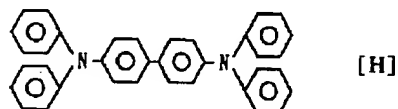
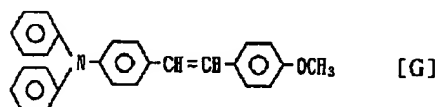
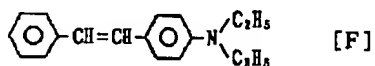
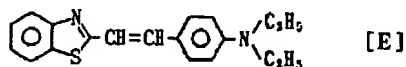
実施例18と同様の方法で同一の構成のもの、但し実施

21

22

例18で用いたスチリル化合物の代わりに下記化合物[E]、[F]、[G]、[H]を各々用いる以外は実施例18と全く同様にして感光体を作製した。

[化23]



10

* こうして得られた感光体について、実施例18と同様の方法で V_0 、 $E_{1/2}$ 、 DDR_1 を測定した。

[0057] 比較例5~7

実施例18と同様の方法で同一の構成のもの、但し実施例18で用いたスチリル化合物の代わりに下記化合物[I]、[J]、[K]を各々用いる以外は実施例18と全く同様にして感光体を作製した。

[化24]

こうして得られた感光体について、実施例15と同様の方法で V_0 、 $E_{1/2}$ 、 DDR_1 を測定した。実施例1~2

1、比較例1~7で得られた感光体の V_0 、 $E_{1/2}$ 、DD

30 R_1 の測定結果を表3および表4にまとめて示す。

[0058]

[表3]

表3

	V_0 (V)	$E_{1/2}$ (luxsec)	DDR_1 (%)
実施例1	-650	0.9	3.0
実施例2	-640	1.2	2.7
実施例3	-650	1.1	3.2
実施例4	-660	1.0	3.0
実施例5	-650	0.8	2.8
実施例6	-640	0.7	3.3
実施例7	-650	0.8	3.0
実施例8	-650	0.7	2.9
実施例9	-640	1.3	3.4
実施例10	-660	0.9	2.8
実施例11	-640	1.1	3.5
実施例12	-650	1.4	3.0
実施例13	-640	0.8	3.2
実施例14	-660	0.7	2.7

23

24

実施例 15	-650	1.0	2.9
実施例 16	-660	0.8	2.5
実施例 17	-650	0.9	2.9
実施例 18	+610	0.9	13.5
実施例 19	+620	0.6	12.0
実施例 20	+610	0.5	12.8
実施例 21	+630	0.8	11.7

【0059】

【表4】

表4

	V ₀ (V)	E _{1/2} (luxsec)	DDR ₁ (%)
比較例1	+620	15.0	12.0
比較例2	+610	10.2	11.5
比較例3	+600	6.5	13.7
比較例4	+610	14.3	12.2
比較例5	+620	13.4	9.8
比較例6	+630	7.8	10.0
比較例7	+610	8.2	11.7

【0060】表3および表4からわかるように、本発明の感光体は積層型でも単層型でも電荷保持能が充分あり、暗減衰率も感光体としては充分使用可能な程度に小さく、また、感度においても優れている。更に、市販の電子写真複写機(ミノルタカメラ社製;EP-350Z)による正帯電時の繰り返し実写テストを実施例9の感光体において行なったが、1000枚のコピーを行なっても、初期、最終画像において階調性が優れ、感度変化が無く、鮮明な画像が得られ、本発明の感光体は繰り返し特性も安定していることがわかる。

【0061】

【発明の効果】本発明は、新規なスチリル化合物を提供した。本発明が提供したスチリル化合物は、感光体、エレクトロルミネセンス素子の電荷輸送層に使用することができる。本発明のスチリル化合物を電荷輸送層に適用した感光体は、感度、電荷輸送性、初期表面電位、暗減衰率の感光体特性に優れ、繰り返し使用に対する光疲労も少ない。

【図面の簡単な説明】

【図1】 導電性支持体上に感光層を積層してなる分散型感光体の模式図である。

【図2】 導電性支持体上に電荷発生層および電荷輸送層を積層してなる機能分離型感光体の模式図である。

【図3】 導電性支持体上に電荷輸送層および電荷発生層を積層してなる機能分離型感光体の模式図である。

【図4】 導電性支持体上に感光層および表面保護層を形成した感光体の模式図である。

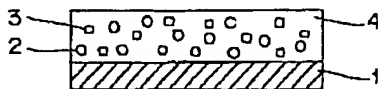
【図5】 導電性支持体上に中間層および感光層を形成した感光体の模式図である。

【図6】 エレクトロルミネセンス素子の概略断面図を表わす。

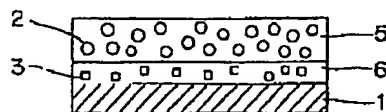
【図7】 本発明のスチリル化合物例の赤外吸収スペクトルを示す図である。

【図8】 本発明のスチリル化合物例の赤外吸収スペクトルを示す図である。

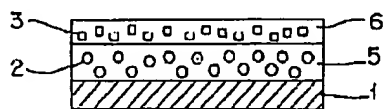
【図1】



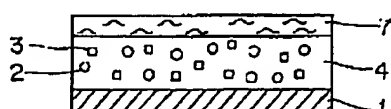
【図2】



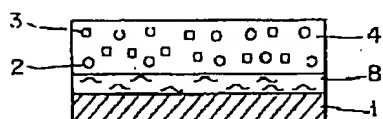
【図3】



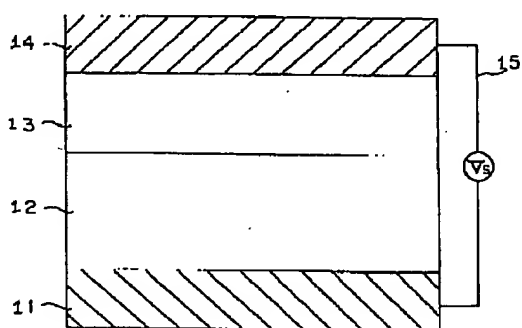
【図4】



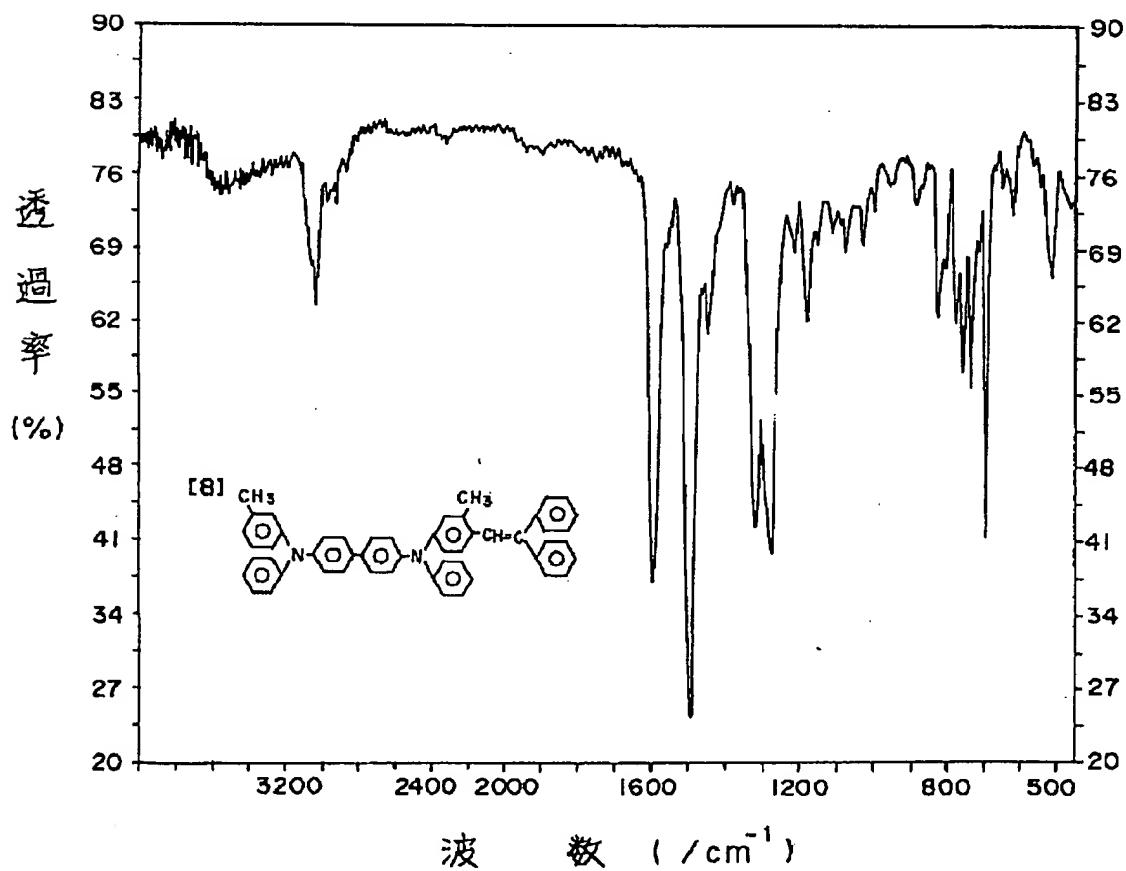
【図5】



【図6】



【図8】



【図7】

